

**WEST****End of Result Set** [Generate Collection](#) 

JP 57-100128

L7: Entry 4 of 4

File: DWPI

Jun 22, 1982

DERWENT-ACC-NO: 1982-62792E

DERWENT-WEEK: 198230

COPYRIGHT 2003 DERWENT INFORMATION LTD

**TITLE:** Epoxy! resin compsn. - consists of polyfunctional epoxy! resin, novolak cpd. as hardener, and 2-methyl imidazole pyromellitic anhydride salt as curing assistant

**PATENT-ASSIGNEE:**

ASSIGNEE	CODE
MATSUSHITA ELECTRIC WORKS LTD	MATW

**PRIORITY-DATA:** 1980JP-0176107 (December 13, 1980)

**PATENT-FAMILY:**

PUB-NO	PUB-DATE	LANGUAGE	PAGES	MAIN-IPC
JP 57100128 A	June 22, 1982		004	
JP 86054326 B	November 21, 1986		000	

**APPLICATION-DATA:**

PUB-NO	APPL-DATE	APPL-NO	DESCRIPTOR
JP 57100128A	December 13, 1980	1980JP-0176107	

**INT-CL (IPC):** C08G 59/62; H01L 23/30

**ABSTRACTED-PUB-NO:** JP 57100128A

**BASIC-ABSTRACT:**

The epoxy resin compsn. consists of (1) polyfunctional epoxy resin (2) novolak type cpd. as hardener and (3) 2-methyl imidazole-pyromellitic anhydride salt as curing assistant.

(2) and (3) are used in amts of 10 - 100 and 1 - 10 pts.wt. respectively per 100 pts.wt. of (1). (1) has an epoxy equiv. of 100-4000 and includes bisphenol type, alicyclic, novolak type, nitrogen-contg. and halogenated epoxy resins. (2) is obtained by interaction of phenol and formaldehyde in the presence of acidic catalyst. The compsn. may contain 30 - 80 wt.% filler e.g. (fused) silica, quartz glass powder, calcium carbonate, clay, talc, etc.

Compsn. can be filled under low pressure and exhibits excellent transfer formability. It is esp. useful for sealing semi-conductor devices such as IC and LSI.

**TITLE-TERMS:** POLYEPOXIDE RESIN COMPOSITION CONSIST POLYFUNCTIONAL POLYEPOXIDE RESIN  
NOVOLAK COMPOUND HARDEN METHYL IMIDAZOLE PYROMELLITIC ANHYDRIDE SALT CURE ASSIST

**DERWENT-CLASS:** A21

**CPI-CODES:** A05-A01B; A05-C03; A08-D; A08-D04; A12-E04; A12-E07C;

**BEST AVAILABLE COPY**

⑨ 日本国特許庁 (JP)  
⑩ 公開特許公報 (A)

⑪ 特許出願公開

昭57-100128

⑤Int. Cl.<sup>3</sup>  
C 08 G 59/62  
// H 01 L 23/30

識別記号

府内整理番号  
7342-4 J  
7738-5 F

⑥公開 昭和57年(1982)6月22日  
発明の数 1  
審査請求 未請求

(全 4 頁)

⑦エポキシ樹脂組成物

⑧特 願 昭55-176107

⑨出 願 昭55(1980)12月13日

⑩發明者 松村昌弘

門真市大字門真1048番地松下電  
工株式会社内

⑪發明者 大津正明

⑫發明者 橋田義弘

門真市大字門真1048番地松下電  
工株式会社内

⑬出願人 松下電工株式会社

門真市大字門真1048番地

⑭代理人 弁理士 松本武彦

門真市大字門真1048番地松下電  
工株式会社内

明細書

1. 発明の名称

エポキシ樹脂組成物

2. 特許請求の範囲

(1) 多官能エポキシ樹脂、硬化剤としてのノボラック系化合物および硬化助剤としての2-メチルイミダゾール・無水ビロメリット酸塩が配合されているエポキシ樹脂組成物。

(2) 多官能エポキシ樹脂100重量部に対して2-メチルイミダゾール・無水ビロメリット酸塩が1~10重量部配合されている特許請求の範囲第1項記載のエポキシ樹脂組成物。

3. 発明の詳細な説明

この発明は、成形性(低圧充填性)の優れたエポキシ樹脂組成物、特にIC, LSI封止用として最適なエポキシ樹脂組成物に関するものである。

トランジスター、IC、LSI等の半導体装置は、一般に、大量生産可能なトランスファー成形で樹脂封止されているが、トランスファー成形を行う場合、低圧で充分流動性のある封止材料を用いな

いと、IC、LSI等の電子の断線が起り、高価な半導体装置が不良品になってしまいます。しかし、従来の市販品を含む材料には、低圧流動性を満足させるものはほとんどないのが現状である。

この発明者らは、このような情況に鑑み、低圧流動性に優れ、しかも速硬化かつ貯蔵安定性に優れた半導体装置封止用エポキシ樹脂組成物を得るために鋭意研究した結果、多官能エポキシ樹脂に、硬化剤としてノボラック系化合物を配合するとともに、硬化助剤として2-メチルイミダゾール・無水ビロメリット酸塩を配合すると、所期の目的を達成しうることを見いだしこの発明を完成するに至った。

すなわち、この発明は、多官能エポキシ樹脂、硬化剤としてのノボラック系化合物および硬化助剤としての2-メチルイミダゾール・無水ビロメリット酸塩が配合されているエポキシ樹脂組成物をその要旨とするものである。

この発明で用いるエポキシ樹脂は、分子内に少なくとも2個のエポキシ基を有する化合物であれ

ば特に限定しない。しかし一般的には、エポキシ当量 100 ~ 4000 の通常のエポキシ樹脂が用いられる。例えば、ビスフェノール系エポキシ樹脂、脂環式エポキシ樹脂、ノボラック系エポキシ樹脂、含蜜素エポキシ樹脂ならびにプロム化エポキシ樹脂のようなハロゲン化エポキシ樹脂があげられる。

また硬化剤として用いるノボラック系化合物としては、フェノール、クレゾール、キシレノール、レゾルシン等のフェノール類とホルムアルデヒドのようなアルデヒド類とを酸性触媒下で反応させて得られるものがあげられる。このようなノボラック系化合物の配合量は、エポキシ樹脂 100 重量部（以下「部」と略す）に対して、10 ~ 100 部が好ましい。この範囲をはずれると、いずれの場合も硬化不足となり、硬化物の耐熱性、耐薬品性が劣るようになるからである。

この発明では、硬化促進剤として、2-メチルイミダゾール・無水ピロメリット酸塩を用いる。このように、硬化促進剤として 2-メチルイミダゾール・無水ピロメリット酸塩を用いることがこ

料をつくる場合は、つぎのようにして行われる。すなわち、この発明のエポキシ樹脂組成物およびその他の充填材等を混合する。混合は、ミキシングローラーや加圧ニーダー等の汎用の混合機械を使用して行えばよい。ついで混合物を微粉砕し必要に応じてタブレット化してトランスファー成形材料とする。

この発明の樹脂組成物からつくられた成形材料は、低圧流動性に優れ、速硬化性、かつ材料の保存安定性が良好であるため、IC、LSI の封止用として最適であり、封止される半導体装置の成形時の不良率の低減を実現しうるようになるのである。

つぎに実施例について比較例と併せて説明する。まず、つぎのようにして硬化助剤および硬化剤を合成した。

#### （硬化助剤の合成）

無水ピロメリット酸 109 部を THF 109 部に溶解させた液をフラスコに入れた。他方滴下ロート中に、2-メチルイミダゾール 82 部を THF 82

の発明の特徴である。他のイミダゾール誘導体および有機酸の錯塩を用いても、この発明のような低圧流動性に優れたエポキシ樹脂組成物は得られない。硬化促進剤の量は、エポキシ樹脂 100 部に対して 1 ~ 10 部が好ましい。1 部未満では硬化が遅く、また 10 部を超えると貯蔵安定性が悪くなる欠点が生じてくるからである。

なお、本発明のエポキシ樹脂組成物には、半導体装置封止剤として各種の充填剤を配合することが好ましい。例えば、シリカ、滑石シリカ、石英ガラス粉、炭酸カルシウム、クレー、タルク、けいそう土、マイカ、ケイ酸ジルコニアなどがあげられ、全材料に対して 80 ~ 80 重量%（以下「%」と略す）用いることができる。

離型剤としては、モンタナワックス、カルナウバワックス、ステアリン酸、ステアリシ酸金属性塩などが用いられる。さらに必要に応じて難燃化剤、表面処理剤、染料などを用いることもできるのである。

この発明のエポキシ樹脂組成物を用いて成形材

料をつくる場合は、つぎのようにして行われる。すなわち、この発明のエポキシ樹脂組成物およびその他の充填材等を混合する。混合は、ミキシングローラーや加圧ニーダー等の汎用の混合機械を使用して行えばよい。ついで混合物を微粉砕し必要に応じてタブレット化してトランスファー成形材料とする。

#### （硬化剤の合成）

フェノール 94 部、87 % ホルマリン 64.9 部、磷酸 0.27 部を攪拌器、冷却器、温度計を備えたフラスコに入れ、100°C で 100 分間反応させた。その後薄膜乾燥脱水で水を取り除き、最終 160°C で 60 分間反応させ脱磷酸を行なってフェノールノボラックを得た。このノボラックは、遊離フェノール 0.2 % で数平均分子量 700 であった。また OH 当量は 104.2 であった。

つぎに、上記の硬化助剤および硬化剤を用いてつぎのようにして成形材料を得た。

#### （実施例 1 ~ 8、比較例 1 ~ 5）

各原料を下記のように配合した。

クレゾールノボラック型エポキシ樹脂(エポキシ当量 207.9, YDCN 220L, 東都化成社製) : 100 部  
 フェノールノボラック(OH 当量 104.2) : 50.1 部  
 硬化促進剤: 次表に示すものを同表に示す量用いた。  
 溶融シリカ(S-1, 電気化学工業社製) : 360 部  
 ステアリン酸亜鉛 : 8 部  
 カーボン・ブラック : 1 部  
 エポキシシラン(KBM408, 信越化学社製) : 1 部  
 上記配合物を 100 ~ 120 °C においてミキシングローラで 20 ~ 80 分間混練し、円板延び(測定条件は次表の \*3 の保存安定性の場合と同じ)で 150 ~ 170 mm になった時、混練をやめ、シート状材料を取り出し、冷却粉碎してエポキシ樹脂成形材料を得た。

## 〔実施例 4, 5〕

エポキシ樹脂として、エポキシ当量 190 のもの(N-740, 大日本インキ社製)を 100 部用い、フェノールノボラック(OH 当量 104.2)の量を 54.8 部にした。それ以外は上記と同様にしてエポキシ樹脂成形材料を得た。

硬化促進剤 (部)	流動性 (見かけ粘度 Poise)	硬化促進剤 (反応速度定 数, sec <sup>-1</sup> )	保存安定性 (日)	*4 不良 枚数	
				*1	*2
実施例 1	A 1	2.6 × 10 <sup>4</sup>	4.5 × 10 <sup>-3</sup>	> 15	0 / 50 0 / 50
	◆ 2	◆ 5	8 × 10 <sup>4</sup>	◆ 15	0 / 50 0 / 50
	◆ 8	◆ 10	4 × 10 <sup>4</sup>	8 × 10 <sup>-3</sup>	> 15
	◆ 4	◆ 8	2.8 × 10 <sup>4</sup>	5 × 10 <sup>-3</sup>	> 15
	◆ 5	◆ 5	8.5 × 10 <sup>4</sup>	5.5 × 10 <sup>-3</sup>	> 15
	比較例 1	◆ 0.5	2 × 10 <sup>4</sup>	1 × 10 <sup>-3</sup>	> 15
比較例 1	◆ 2	◆ 12	1 × 10 <sup>6</sup>	8 × 10 <sup>-3</sup>	< 8
	◆ 8	B 5	1.5 × 10 <sup>5</sup>	7.5 × 10 <sup>-3</sup>	< 8
	◆ 4	C 5	9 × 10 <sup>4</sup>	8 × 10 <sup>-3</sup>	< 8
	◆ 5	D 5	9.7 × 10 <sup>4</sup>	6 × 10 <sup>-3</sup>	< 8
					0 / 50 25 / 50
					0 / 50 28 / 50

(註) 硬化促進剤  
 A ... 2-メチルイミダゾール・無水ビロメリット酸塩  
 B ... 2-メチルイミダゾール・硫酸塩  
 C ... 2-メチルイミダゾール・無水フタル酸塩  
 D ... 2-エチル-4-メチルイミダゾール・無水ビロメリット酸塩

以上の実施例および比較例で得られたエポキシ樹脂成形材料の特性およびそれを用いて製造した成形品の不良数を求めて次表に示した。実施例のものは、ふくれおよび断線がなく極めて優れていることがわかる。

(以下余白)

なお、上記の表の試験はつきのようにして行った。

## \*1 流動性(100 °C で測定)

試料 1.3 g をタブレット成形し、このサンプルを図面の流動評価金型 1 のシリンドラー部(2 φ) 2 に入れ、プランジャー 8 で 50, 100, 200 mm/秒の速度でサンプル 4 をノズル(2 φ - 8 L) 5 から押し出した時のせん断応力とせん断速度から見かけ粘度を計算した。

## \*2 硬化性

試料 2.2 g のタブレットをキュラストメーターに掛けて硬化曲線を得た。そしてこの曲線から反応速度定数を求めた。なお、キュラストメーター条件はつきのとおりに設定した。

圧 力 : 4.0 kg/cm<sup>2</sup>

温 度 : 170 °C

下金型振動数 : 6 回/分

上, 下金型クリアランス : 0.4 mm

## \*3 保存安定性

40 °C で成形材料を放置し、流動性(円板延び

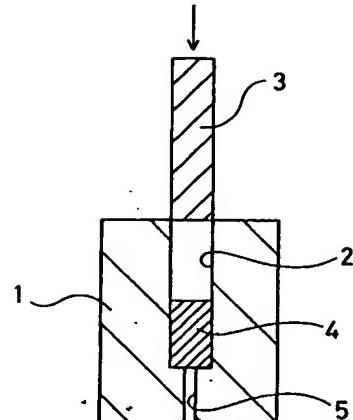
で測定、26号プレス、ラム径180mm、160°Cで  
ゲージ圧15kg/cm<sup>2</sup>の低下が初期の10%になっ  
たときの放置時間で示した。

#### \*4 不良数

リードフレームのダイアタッチ部と各リード部  
とを、直径80μmの金線でワイアボンディング  
した試料を用い、170°Cにおいて80kg/cm<sup>2</sup>、1.5  
分の条件でトランジスター成形して封止した。そ  
して、成形後の①外観不良(ふくれ発生)、②各  
端子の導通状態調べ、ふくれの発生および断線  
した個数(%)を全体(50個)中の不良数%/50  
として示した。

#### 4. 図面の簡単な説明

図面は流動性試験の説明図である。



特許出願人 松下電工株式会社

代理人 弁理士 松本武彦

BEST AVAILABLE COPY